

Rec'd PCT TO 20 AUG 2004

PCT/JP03/01877
10/505141
14.03.03

BEST AVAILABLE COPY

日本特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて
いる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed
with this Office

出願年月日

Date of Application:

2002年 7月 4日

出願番号

Application Number:

特願2002-195797

[ST.10/C]:

[JP2002-195797]

RECD 09 MAY 2003

WIPO PCT

出願人

Applicant(s):

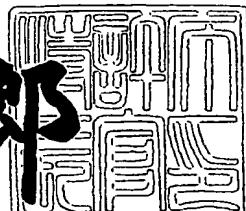
東ソー株式会社

PRIORITY
DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2003年 4月 22日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2003-3029417

【書類名】 特許願
【整理番号】 PA211-0809
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 C01D 15/00
C01G 45/00
H01M 4/02
H01M 4/50
H01M 10/40

【発明者】

【住所又は居所】 山口県新南陽市政所3丁目4番17号
【氏名】 津久間 孝次

【発明者】

【住所又は居所】 山口県山口市下小鯖887-37
【氏名】 国吉 実

【特許出願人】

【識別番号】 000003300
【氏名又は名称】 東ソー株式会社
【代表者】 土屋 隆
【電話番号】 (03)5427-5134

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 003610
【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1
【物件名】 図面 1
【物件名】 要約書 1

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 リチウムマンガン複合酸化物顆粒二次粒子及びその製造方法並びにその用途

【特許請求の範囲】

【請求項1】 リチウムマンガン複合酸化物の結晶一次粒子が集合してなる顆粒二次粒子において、顆粒内にマイクロメーターサイズの開気孔が多数存在し、その開気孔の平均径が0.5~3μmの範囲にあり、且つその開気孔の全体積が、顆粒全体積に対して3~20vol.%の範囲にあるリチウムマンガン複合酸化物顆粒二次粒子。

【請求項2】 顆粒二次粒子の比表面積が0.2~1.0m²/g、顆粒二次粒子の平均径が10~30μm、顆粒二次粒子を構成する結晶一次粒子の平均径が0.5~4.0μmである請求項1記載のリチウムマンガン複合酸化物顆粒二次粒子。

【請求項3】 組成式Li_{1+X}M_YMn_{2-X-Y}O_{4-Z}F_Z（式中、X=0.0~0.2、Y=0.0~0.3、Z=0.0~0.3、M:Al, Co, Ni, Cr, Fe, Mgから選ばれる1種以上の元素）で表示される請求項1又は請求項2記載のリチウムマンガン複合酸化物顆粒二次粒子。

【請求項4】 マンガン酸化物の微粉末と炭酸リチウムの微粉末を分散したスラリーを噴霧乾燥により顆粒化した後、700~900℃の温度で焼成することを特徴とする請求項1乃至請求項3記載のリチウムマンガン複合酸化物顆粒二次粒子の製造方法。

【請求項5】 マンガン酸化物の微粉末及び炭酸リチウムの微粉末の平均粒子径が1μm以下である請求項4記載のリチウムマンガン複合酸化物顆粒二次粒子の製造方法。

【請求項6】 マンガン酸化物の微粉末とリチウム原料および開気孔形成剤を分散したスラリーを、噴霧乾燥により顆粒化した後、700~900℃の温度で焼成することを特徴とする請求項1乃至請求項3記載のリチウムマンガン複合酸化物顆粒二次粒子の製造方法。

【請求項7】 開気孔形成剤が平均粒子径1μm以下であり、且つ加熱により消

失する物質であることを特徴とする請求項6に記載のリチウムマンガン複合酸化物顆粒二次粒子の製造方法。

【請求項8】スラリー中に、マンガン、リチウム、フッ素及び請求項3に記載のM以外の元素の化合物であり、且つ、開気孔形成剤以外の化合物を添加剤として加えることを特徴とする請求項4乃至請求項7記載のリチウムマンガン複合酸化物粉末の製造方法。

【請求項9】添加物がホウ素化合物であり、該化合物をB/Mnモル比0.005~0.05の範囲内で、スラリー中に加え、焼成後水洗によりホウ素をB/Mnモル比0.0005以下にまで除去することを特徴とする請求項8記載のリチウムマンガン複合酸化物顆粒二次粒子の製造方法。

【請求項10】正極活物質として、請求項1乃至請求項3に記載のリチウムマンガン複合酸化物粉末を用いることを特徴とする非水電解質二次電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

リチウムマンガン複合酸化物顆粒二次粒子及びその製造方法並びにその用途である非水電解質二次電池に関する。

【0002】

【従来の技術】

リチウムマンガン複合酸化物を非水電解質二次電池の正極活物質として使用する際、結晶一次粒子が焼結した適当な大きさの顆粒二次粒子からなる粉末が用いられている。顆粒二次粒子の製造方法としては、従来からいくつかの方法が適用されてきた。例えば、特開2000-169151には電解二酸化マンガンと炭酸リチウムの反応からリチウムマンガン複合酸化物を得る際、出発物質である電解二酸化マンガンの大きさを粉碎調整することにより、反応後もその大きさを保った顆粒二次粒子とする方法が、特開平10-172567には、電解二酸化マンガン粉末を水溶性リチウム化合物の水溶液に分散させたスラリーを噴霧乾燥し、造粒して顆粒二次粒子とする方法が、また、特開平10-228515、及び特開平10-297924には微粉末をローラコンパクター等を用い圧密・塊成

化して顆粒二次粒子とする方法が開示されている。これらの開示資料からも知られるように、従来は電池の体積当たりの放電容量を高める観点から、顆粒二次粒子をできるだけ緻密にし、粉末の充填密度を高くすることにのみ重点がおかれてきた。従って、これまで顆粒二次粒子の組織、特に内在する気孔については積極的に特徴付けた例がない。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

本発明はリチウムマンガン複合酸化物の顆粒二次粒子の組織制御を課題とし、特に顆粒内の気孔形態に着目してなされた。高出力特性を示す非水電解質二次電池の構成材料として適するリチウムマンガン複合酸化物正極活物質、並びにその製造方法を提供することを目的とする。

【0004】

【課題を解決するための手段】

本発明はリチウムマンガン複合酸化物の顆粒二次粒子に存在する気孔の大きさと量が、この酸化物を正極活物質とする非水電解質二次電池の放電レート特性を支配する因子であることを見出すことによって成し遂げられた。すなわち、本発明からなるリチウムマンガン複合酸化物粉末は顆粒二次粒子内にマイクロメーターサイズの開気孔が多数存在し、その大きさが平均径として $0.5 \sim 3 \mu\text{m}$ の範囲にあり、且つその量が顆粒体積に対して $3 \sim 20\text{vol. \%}$ の範囲にあることを特徴とする。

【0005】

最大の特徴は顆粒内にマイクロメーターサイズの開気孔を多数存在させることにある。この結果として、電池の放電レート特性の向上が図れる。

【0006】

マイクロメーターサイズの開気孔は大きさと量で規定され、大きさは平均径として $0.5 \sim 3 \mu\text{m}$ 、量は顆粒体積に対して $3 \sim 20\text{vol. \%}$ である。気孔の平均径が $0.5 \mu\text{m}$ 未満では電池の放電レート特性が低下する。また、 $3 \mu\text{m}$ をこえる開気孔になると顆粒の強度を保つことが困難となる。最も好ましい平均径は $1.0 \sim 2.8 \mu\text{m}$ の範囲である。気孔の割合は、 3vol. \% 未満では電池

の放電レート特性が低下する。

【0007】

また20v o l. %をこえると電極材料として要求される高い粉末充填密度を確保することが困難となる。最も好ましい気孔の割合は5~16v o l. %である。

【0008】

なお、気孔の平均径及び量は気孔を球形近似して求められる値であり、測定方法として顆粒の切断面の走査型電子顕微鏡写真を撮り、画像解析処理する方法によって知ることができ、ここでは気孔数500個以上の平均から求めた個数平均値とする。

【0009】

本発明の粉末は気孔以外に、比表面積0.2~1.0m²/g、顆粒二次粒子の平均径10~30μm、顆粒を構成する結晶一次粒子の平均径0.5~4.0μmの各範囲によって特徴付けられる。これらの値は正極活物質として二次電池性能を最大限引き出すために特定される。例えば比表面積1.0m²/gをこえたり、或いは結晶一次粒子径0.5μm未満では、50℃以上の温度において、充放電容量のサイクル劣化が顕著となる場合があり、比表面積0.2m²/g未満、或いは結晶一次粒子径4.0μmをこえると放電レート特性の低下をきたす場合がある。顆粒二次粒子の平均径は10~30μmの範囲外になると、シート電極を構成する上で不都合となる場合がある。

【0010】

本発明のリチウムマンガン複合酸化物は組成式Li_{1+X}M_YMn_{2-X-Y}O_{4-Z}F_Z(式中、X=0.0~0.2、Y=0.0~0.3、Z=0.0~0.3、M:Al, Co, Ni, Cr, Fe, Mgから選ばれる1種以上の元素)で表示される。充放電容量と充放電繰り返し安定性を決定する上でLi含量Xと添加元素Mの含量Yは重要で、特に好ましい範囲としては、X=0.05~0.15、Y=0.5~0.25、X+Y=0.15~0.30が選ばれる。

【0011】

本発明の粉末の製造方法はマンガン酸化物の微粉末と炭酸リチウムの微粉末を

分散したスラリーを噴霧乾燥により顆粒化した後、700～900℃の温度で焼成すること、又はマンガン酸化物の微粉末とリチウム原料および開気孔形成剤を分散したスラリーを、噴霧乾燥により顆粒化した後、700～900℃の温度で焼成することを特徴とする。

【0012】

マンガン酸化物の粉末としては、電解二酸化マンガン、化学合成二酸化マンガン、 Mn_3O_4 、 Mn_2O_3 等が挙げられる。リチウム源としては、水溶性の水酸化リチウム、或いは硝酸リチウム等と、水に不溶性の炭酸リチウムが挙げられる。水に不溶性の炭酸リチウムをリチウム源として用いる場合は、炭酸リチウム及びマンガン酸化物の粒子サイズが気孔の大きさを支配する因子として重要となる。その粒子サイズはサブミクロンオーダーが適当であり、炭酸リチウムとマンガン酸化物混合粉末の平均粒子径として1μm以下が好ましく、0.3～0.7μmの範囲がさらに好ましい。このような粒子サイズはマンガン酸化物の粉末と炭酸リチウムの粉末を水に入れ、粉碎混合することで容易に達成される。粉碎混合装置としては、ボールミル、振動ミル、温式媒体攪拌式ミル等が使用できる。

【0013】

開気孔形成剤を使用する場合、その粒子サイズが気孔の大きさを支配する因子として重要となる。その粒子サイズはサブミクロンオーダーが適当であり、具体的には1μm以下が好ましく、0.3～0.7μmの範囲がさらに好ましい。このような粒子サイズはマンガン酸化物の粉末とリチウム原料および開気孔形成剤粉末を水に入れ、粉碎混合することで容易に達成される。粉碎混合装置としては、ボールミル、振動ミル、温式媒体攪拌式ミル等が使用できる。

【0014】

開気孔形成剤としては、カーボンブラック、カーボンナノチューブ、グラファイト等に例示される加熱により消失する物質を用いる。

【0015】

温式粉碎混合されたスラリーは噴霧乾燥により顆粒化される。噴霧乾燥はスラリーを回転ディスク、或いは流体ノズルで噴霧し、液滴を熱風で乾燥する通常のスプレードライヤーで行うことができる。顆粒化の方法として、噴霧乾燥以外の

方法例えれば液中造粒法、転動造粒法等が適用できるが、噴霧乾燥が最も工業的に有利である。

【0016】

請求項3に記載の添加元素Mを加える場合はその元素の酸化物、またはその前駆物質（水酸化物等）の形で加えるのがよく、その添加方法は粉碎混合の前にマンガン酸化物と炭酸リチウムからなるスラリーに添加することが適切である。

【0017】

請求項9に記載のホウ素化合物の添加はリチウムマンガン複合酸化物の結晶一次粒子を成長させる目的で行われる。ホウ素化合物としては、 H_3BO_3 、 B_2O_3 及び $Li_2O \cdot nB_2O_3$ （ $n = 1 \sim 5$ ）等を用いることができ、添加方法は焼成前でなければならず、噴霧乾燥前のスラリーに入れるのが適当である。添加量は、マンガンに対するモル比で0.0005～0.05の範囲である。ホウ素酸化物は焼成、結晶表面に残存する。残存した結晶表面のホウ素酸化物は電池性能に悪影響を及ぼすため、ホウ素を水洗によりマンガンに対するモル比で0.0005以下になるまで除去する必要がある。

【0018】

本発明のリチウムマンガン複合酸化物を正極活物質として用いた非水電解質二次電池は優れた放電レート特性を示す。この優れた放電レート特性は、本発明のリチウムマンガン複合酸化物の顆粒二次粒子内に存在する多数の開気孔からもたらされたものと推定される。すなわち、放電レートはリチウムイオンの正極活物質内での輸送のされ易さに応じて良くなるが、正極活物質が多数の開気孔により網目状組織と化した結果、リチウムイオンの物質内～外部電解液間の輸送距離が短くなり、輸送が容易になったものと推定される。

【0019】

【実施例】

以下本発明を実施例により具体的に説明するが、本発明は下記の実施例に限定されるものではない。

【0020】

実施例1

炭酸リチウム粉末（平均粒子径7μm）と電解二酸化マンガン粉末（平均粒子径3μm）及びホウ酸を組成 $\text{Li}_{1.1}\text{Mn}_{1.9}\text{B}_{0.01}\text{O}_4$ になるように秤量し、水を適量加えた後、湿式媒体攪拌式ミルで1時間粉碎した。固形分濃度が15wt%のスラリーとなるように水を加えて調整し、噴霧乾燥装置により水を蒸発させ、球状の顆粒乾燥粒子を得た。噴霧乾燥は熱風入口温度250℃で行った。この乾燥粉末を850℃で5時間焼成してリチウムマンガン複合酸化物とした。さらに95℃温水浴中で1時間洗浄し、濾過後乾燥して試料を得た。

【0021】

実施例2～4

実施例1で用いた炭酸リチウム、電解二酸化マンガン、ホウ酸の各粉末以外に添加剤(M)として、水酸化アルミニウム、酸化クロム、水酸化ニッケルの各粉末を追加して、組成 $\text{Li}_{1.1}\text{M}_{0.1}\text{Mn}_{1.8}\text{B}_{0.01}\text{O}_4$ (M=Al、Cr又はNi)となるように秤量した以外は実施例1と同様な方法によって試料を得た。

【0022】

実施例5

実施例1で用いた炭酸リチウム、電解二酸化マンガン、ホウ酸の各粉末以外に添加剤として弗化リチウムと水酸化アルミニウムの各粉末を追加して、組成 $\text{Li}_{1.03}\text{A}_{1.016}\text{Mn}_{1.81}\text{B}_{0.005}\text{O}_{3.8}\text{F}_{0.2}$ となるように秤量した以外は実施例1と同様な方法によって試料を得た。

【0023】

比較例1

炭酸リチウム粉末を水酸化リチウム一水和物($\text{LiOH} \cdot \text{H}_2\text{O}$)粉末に代えた以外は実施例1と同様の方法によって試料を得た。なお、水酸化リチウム一水和物は噴霧乾燥前のスラリー中では水に完全に溶解した状態であった。

【0024】

比較例2～4

炭酸リチウム粉末を水酸化リチウム一水和物($\text{LiOH} \cdot \text{H}_2\text{O}$)粉末に代えた以外は実施例2～4と同様の方法によって試料を得た。なお、水酸化リチウム一水和物は噴霧乾燥前のスラリー中では水に完全に溶解した状態であった。

【0025】

比較例5

炭酸リチウム粉末を水酸化リチウム一水和物 ($\text{LiOH} \cdot \text{H}_2\text{O}$) 粉末に代えた以外は実施例5と同様の方法によって試料を得た。なお、水酸化リチウム一水和物は噴霧乾燥前のスラリー中では水に完全に溶解した状態であった。

【0026】

比較例6

電解二酸化マンガン（平均粒子径 $1.5 \mu\text{m}$ ）と炭酸リチウム（平均粒子径 $3 \mu\text{m}$ ）の各粉末を組成 $\text{Li}_{1.12}\text{Mn}_{1.88}\text{O}_4$ になるように秤量し、乾式混合した後、 900°C で12時間焼成しリチウムマンガン複合酸化物となった試料を得た。

【0027】

実施例6

実施例1で噴霧乾燥に用いたスラリーに含まれる二酸化マンガンと炭酸リチウム混合粉末の粒度をレーザー回折散乱粒度計で測定した結果、平均体積粒子径は $0.65 \mu\text{m}$ であった。

【0028】

実施例7

実施例1～5、比較例1～5及び比較例6の試料について、組成を化学分析により、比表面積を BET 測定装置により、顆粒二次粒子の平均径をレーザー回折散乱粒度計により、顆粒を構成する結晶一次粒子の平均径を走査型電子顕微鏡観察により求め、表1の結果を得た。

【0029】

【表1】

	組成(注)	比表面積 (m ² /g)	顆粒二次粒子の平均径 (μm)	結晶一次粒子の平均径 (μm)
実施例1	$\text{Li}_{1.08}\text{Mn}_{1.92}\text{O}_4$	0.55	19.7	1.5
実施例2	$\text{Li}_{1.08}\text{Al}_{0.10}\text{Mn}_{1.82}\text{O}_4$	0.44	18.5	1.8
実施例3	$\text{Li}_{1.07}\text{Cr}_{0.05}\text{Mn}_{1.84}\text{O}_4$	0.56	19.5	1.2
実施例4	$\text{Li}_{1.07}\text{Ni}_{0.10}\text{Mn}_{1.83}\text{O}_4$	0.50	21.0	1.2
実施例5	$\text{Li}_{1.02}\text{Al}_{0.15}\text{Mn}_{1.83}\text{O}_{3.8}\text{F}_{0.2}$	0.38	17.5	2.0
比較例1	$\text{Li}_{1.07}\text{Mn}_{1.93}\text{O}_4$	0.48	18.5	1.4
比較例2	$\text{Li}_{1.08}\text{Al}_{0.09}\text{Mn}_{1.83}\text{O}_4$	0.40	19.0	1.8
比較例3	$\text{Li}_{1.07}\text{Cr}_{0.10}\text{Mn}_{1.83}\text{O}_4$	0.48	20.3	1.5
比較例4	$\text{Li}_{1.07}\text{Ni}_{0.10}\text{Mn}_{1.83}\text{O}_4$	0.42	18.0	1.0
比較例5	$\text{Li}_{1.02}\text{Al}_{0.16}\text{Mn}_{1.82}\text{O}_{3.8}\text{F}_{0.2}$	0.40	15.5	1.7
比較例6	$\text{Li}_{1.11}\text{Mn}_{1.89}\text{O}_4$	0.40	13.8	1.6

(注) すべての試料においてホウ素は50 ppm以下であった。

実施例8

実施例1～5、比較例1～5及び比較例6の試料について、顆粒二次粒子の断面写真を走査型電子顕微鏡により撮影した。この際、粉末を硬化性樹脂に埋め込み、表面研磨によって顆粒の切断面を露出させたものを撮影試料とした。電顕写真的画像解析処理を行い、顆粒二次粒子内に存在する開気孔の平均径と量を求め、表2の結果を得た。顆粒切断面の電顕写真（実施例2、比較例2及び比較例6）の例を図1～3に示す。なお、気孔平均径は気孔数500～1000個について個数平均値を探った。

【0030】

【表2】

	気孔平均径 (μm)	気孔量 (vol.%)
実施例1	1.8	9.1
実施例2	2.2	8.4
実施例3	2.8	12.2
実施例4	2.5	5.5
実施例5	1.5	15.5
比較例1	1.1	2.0
比較例2	0.9	2.5
比較例3	0.7	1.5
比較例4	1.5	2.0
比較例5	0.8	1.8
比較例6	0.3	0.5

実施例9

実施例1～5、比較例1～5及び比較例6の試料について、放電レート特性を測定した。各試料粉末と導電剤／結着剤（アセチレンブラック／テフロン（登録商標）系樹脂）を混合して正極活物質とし、負極活物質として金属リチウムを、電解液としてLiPF₆を溶解させたエチレンカーボネート／ジメチルカーボネート溶液を用いコインセル型電池を作成した。これらの電池について室温にて放電レートを測定した。測定結果の例を図4に示す。また、すべての試料について維持率（0.3Cでの放電容量を基準としたときの5.5Cでの放電容量の比率）と放電容量を表3に示す。実施例1～5の試料は比較例1～5及び比較例6の試料に比べて優れた放電レート特性であることが明確である。

【0031】

【表3】

	維持率(%)	放電容量(mAh/g)
実施例1	99.0	110
実施例2	99.3	102
実施例3	99.0	100
実施例4	99.1	95
実施例5	98.8	105
比較例1	92.0	111
比較例2	91.5	104
比較例3	91.0	100
比較例4	91.5	93
比較例5	92.0	104
比較例6	92.5	103

【発明の効果】

本発明のリチウムマンガン複合酸化物は非水電解質二次電池の正極活物質として優れた放電レート特性を示す。従って、高出力リチウムイオン二次電池の正極材料として特に有用である。リチウムイオン二次電池の高出力化はハイブリッド電気自動車用途では特に要求されており、そのための有効な材料となる。それ以外のリチウムイオン二次電池の用途、例えばピュア-電気自動車用、電力貯蔵用、携帯機器用等の電源においても有用な正極材料として利用でき、工業的利用価値は高い。

【図面の簡単な説明】

【図1】実施例2における試料の顆粒二次粒子の断面を示す図である。

【図2】比較例2における試料の顆粒二次粒子の断面を示す図である。

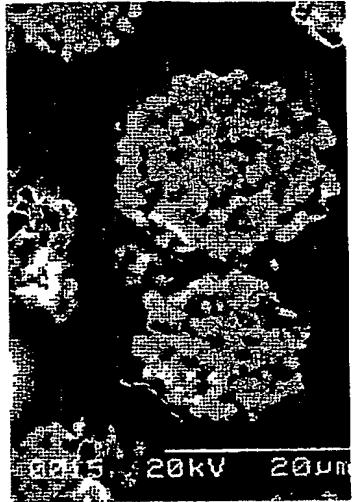
【図3】比較例6における試料の顆粒二次粒子の断面を示す図である。

【図4】実施例2、比較例2及び比較例6における試料の放電レート特性

特2002-195797

【書類名】図面

【図1】



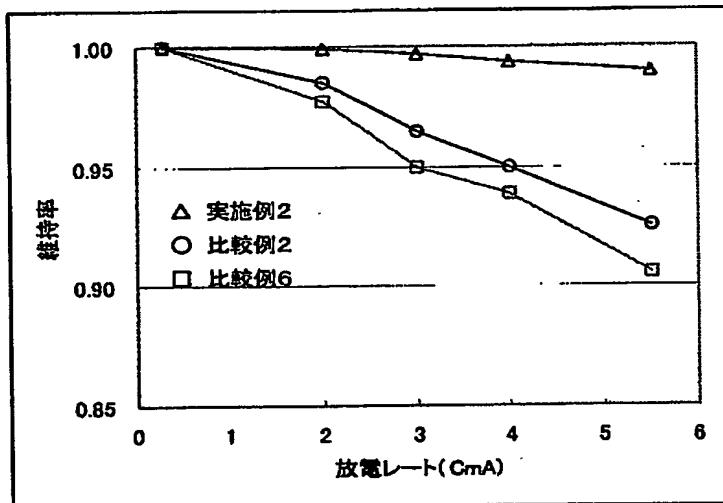
【図2】



【図3】



【図4】



【書類名】要約書

【要約】

【課題】高出力特性を示す非水電解質二次電池の構成材料として適するリチウムマンガン複合酸化物正極活物質、並びにその製造方法を提供する。

【解決手段】リチウムマンガン複合酸化物の結晶一次粒子が集合してなる顆粒二次粒子において、顆粒内にマイクロメーターサイズの開気孔が多数存在し、その開気孔の平均径が $0.5 \sim 3 \mu\text{m}$ の範囲にあり、且つその開気孔の全体積が、顆粒全体積に対して $3 \sim 20 \text{ v o l. \%}$ の範囲にあるリチウムマンガン複合酸化物顆粒二次粒子及びマンガン酸化物の微粉末と炭酸リチウムの微粉末を分散したスラリーを噴霧乾燥により顆粒化した後、 $700 \sim 900^\circ\text{C}$ の温度で焼成するリチウムマンガン複合酸化物顆粒二次粒子の製造方法。

【選択図】図4

特2002-195797

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2002-195797
受付番号	50200981798
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0094
作成日	平成14年 7月 5日

<認定情報・付加情報>

【提出日】 平成14年 7月 4日

次頁無

特2002-195797

出願人履歴情報

識別番号 [000003300]

1. 変更年月日 1990年12月 2日

[変更理由] 住所変更

住 所 山口県新南陽市開成町4560番地

氏 名 東ソー株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.